

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-290649

(P2003-290649A)

(43) 公開日 平成15年10月14日 (2003. 10. 14)

(51) IntCl ⁷	識別記号	F I	テ-マ-ト* (参考)
B 0 1 J 19/00	3 2 1	B 0 1 J 19/00	3 2 1 4 G 0 7 5
C 0 1 B 3/32		C 0 1 B 3/32	A 4 G 1 4 0
// H 0 1 M 8/08		H 0 1 M 8/06	A 5 H 0 2 6
	8/10	8/10	5 H 0 2 7

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 11 頁)

(21) 出願番号 特願2002-95304(P2002-95304)

(22) 出願日 平成14年3月29日 (2002. 3. 29)

(71) 出願人 000001443

カシオ計算機株式会社

東京都渋谷区本町1丁目6番2号

(72) 発明者 塩谷 雅治

東京都青梅市今井3丁目10番地6 カシオ
計算機株式会社青梅事業所内

(74) 代理人 100073221

弁理士 花輪 義男

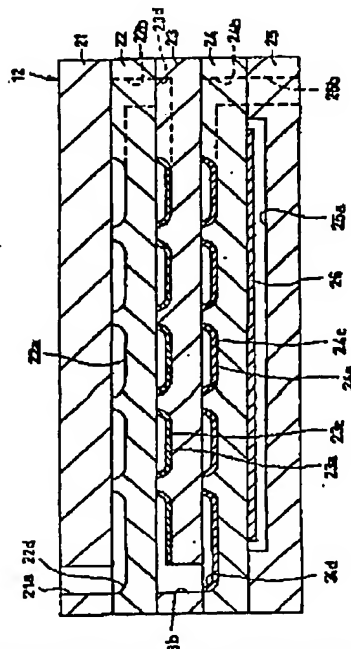
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 小型化学反応装置

(57) 【要約】

【課題】 複数の化学反応を連続して行うことができる上、装置全体を簡素化および小型化することができる小型化学反応装置を提供する。

【解決手段】 小型の第1～第5基板21～25はこの順で積層されている。第1基板21に形成された流入口21a、第2基板22に形成された流路22a、流出口22b、第3基板23に形成された流路23a、流出口23b、第4基板24に形成された流路24a、流出口24bおよび第5基板25に形成された流出口25bは一筆書状に連通されている。この場合、流路23a、24a内には触媒層23c、24cが設けられている。そして、各流路22a、23a、24a内で異なる化学反応を連続して行う。



(2)

特開2003-290649

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 積層された複数の小型の基板と、前記各基板間にそれぞれ設けられた複数の流路とを備え、前記複数の流路はその間の前記基板に形成された連通口を介して連通され、その両端部は前記複数の基板のうちの両外側の基板にそれぞれ形成された流入口および流出口に連通されていることを特徴とする小型化学反応装置。

【請求項2】 請求項1に記載の発明において、前記各流路で異なる化学反応が行われることを特徴とする小型化学反応装置。

【請求項3】 請求項1に記載の発明において、前記複数の基板のうちの少なくとも1つに平板型熱源が設けられていることを特徴とする小型化学反応装置。

【請求項4】 請求項3に記載の発明において、前記流路は3つであり、そのうちの第1流路で発電用燃料の供給を受けて該発電用燃料を気化させて発電用燃料ガスを生成し、第2流路で前記発電用燃料ガスの供給を受けて該発電用燃料ガスを改質して発電用燃料改質ガスを生成し、第3流路で前記発電用燃料ガスまたは前記発電用燃料改質ガスの供給を受けてその中から一酸化炭素の濃度を低くすることを特徴とする小型化学反応装置。

【請求項5】 請求項4に記載の発明において、前記第3流路、前記第2流路および前記第1流路はこの順で前記平板型熱源側からその反対側に向かって配置されていることを特徴とする小型化学反応装置。

【請求項6】 請求項5に記載の発明において、前記平板型熱源の一面側および他面側にそれぞれ前記第3流路、前記第2流路および前記第1流路がこの順で配置されていることを特徴とする小型化学反応装置。

【請求項7】 請求項4に記載の発明において、前記第2流路、前記第3流路および前記第1流路はこの順で前記平板型熱源側からその反対側に向かって配置されていることを特徴とする小型化学反応装置。

【請求項8】 請求項7に記載の発明において、前記平板型熱源の一面側および他面側にそれぞれ前記第2流路、前記第3流路および前記第1流路がこの順で配置されていることを特徴とする小型化学反応装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 この発明は小型化学反応装置に関する。

【0002】

【従来の技術】 化学反応の技術分野では、流体化された混合物質を流路内に設けられた触媒による化学反応（触媒反応）により、所望の流体物質を生成する化学反応装置が知られている。従来のこのような化学反応装置には、半導体集積回路などの半導体製造技術で蓄積された微細加工技術を用いて、シリコン基板上にミクロンオーダーあるいはミリメートルオーダーの流路を形成したものがあ

2

【0003】 図14は従来のこのような小型化学反応装置の一例の透過平面図を示し、図15はそのC-C線に沿う断面図を示したものである。この小型化学反応装置は小型のシリコン基板1を備えている。シリコン基板1の一面には、半導体製造技術で蓄積された微細加工技術を用いて、蛇行した微小な流路2が形成されている。流路2の内壁面には触媒層3が設けられている。

【0004】 シリコン基板1の一面には蓋となるガラス基板4が接合されている。ガラス基板4の流路2の両端部に対応する所定の2箇所には流入口5および流出口6が形成されている。シリコン基板1の他面には蛇行した薄膜ヒータ7が形成されている。薄膜ヒータ7は、この小型化学反応装置における化学反応（触媒反応）が所定の熱条件による吸熱反応を伴うとき、化学反応時に流路2内の触媒層3に所定の熱エネルギーを供給するためのものである。

【0005】 次に、上記構成の小型化学反応装置の使用例について説明する。例えば、近年、実用化に向けて研究開発が目覚ましい燃料改質型の燃料電池を用いた燃料電池システムでは、上記構成の小型化学反応装置を用いて、例えばメタノール水溶液を気化させて得られた発電用燃料ガス（ $\text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O}$ ）から水素を生成して燃料電池に供給するように構成することがある。

【0006】 すなわち、薄膜ヒータ7の発熱により流路2内が所定の温度となるように加熱した状態において、上記発電用燃料ガス（ $\text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O}$ ）が流入口5を介して流路2内に供給されると、流路2内の触媒層3による吸熱反応が生じて、水素と副生成物としての二酸化炭素が生成される。そして、この生成物のうち、二酸化炭素を水素から分離して除去すると、水素のみを生成することができ、これを燃料電池に供給して発電を行うようにすることができる。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】 ところで、上記従来の小型化学反応装置では、複数の化学反応を連続して行う場合、複数の小型化学反応装置を必要とし、且つ、前段の小型化学反応装置の流出口を後段の小型化学反応装置の流入口に接続しなければならず、装置全体が複雑で大型化してしまうという問題があった。そこで、この発明は、複数の化学反応を連続して行うことができる上、装置全体を簡素化および小型化することができる小型化学反応装置を提供することを利点とする。

【0008】

【課題を解決するための手段】 請求項1に記載の発明は、積層された複数の小型の基板と、前記各基板間にそれぞれ設けられた複数の流路とを備え、前記複数の流路はその間の前記基板に形成された連通口を介して連通され、その両端部は前記複数の基板のうちの両外側の基板にそれぞれ形成された流入口および流出口に連通されていることを特徴とするものである。請求項2に記載の発

50

(3)

特開 2003-290649

3

明は、請求項 1 に記載の発明において、前記各流路で異なる化学反応が行われることを特徴とするものである。請求項 3 に記載の発明は、請求項 1 に記載の発明において、前記複数の基板のうちの少なくとも 1 つに平板型熱源が設けられていることを特徴とするものである。請求項 4 に記載の発明は、請求項 3 に記載の発明において、前記流路は 3 つであり、そのうちの第 1 流路で発電用燃料の供給を受けて該発電用燃料を気化させて発電用燃料ガスを生成し、第 2 流路で前記発電用燃料ガスの供給を受けて該発電用燃料ガスを改質して発電用燃料改質ガスを生成し、第 3 流路で前記発電用燃料ガスまたは前記発電用燃料改質ガスの供給を受けてその中から一酸化炭素の濃度を低くすることを特徴とするものである。請求項 5 に記載の発明は、請求項 4 に記載の発明において、前記第 3 流路、前記第 2 流路および前記第 1 流路はこの順で前記平板型熱源側からその反対側に向かって配置されていることを特徴とするものである。請求項 6 に記載の発明は、請求項 5 に記載の発明において、前記平板型熱源の一面側および他面側にそれぞれ前記第 3 流路、前記第 2 流路および前記第 1 流路がこの順で配置されていることを特徴とするものである。請求項 7 に記載の発明は、請求項 4 に記載の発明において、前記第 2 流路、前記第 3 流路および前記第 1 流路はこの順で前記平板型熱源側からその反対側に向かって配置されていることを特徴とするものである。請求項 8 に記載の発明は、請求項 7 に記載の発明において、前記平板型熱源の一面側および他面側にそれぞれ前記第 2 流路、前記第 3 流路および前記第 1 流路がこの順で配置されていることを特徴とするものである。そして、この発明によれば、積層された複数の小型の基板の各基板間にそれぞれ設けられた複数の流路をその間の基板に形成された連通口を介して連通させているので、各基板間に設けられた複数の流路で複数の化学反応を連続して行うことができる上、装置全体を簡素化および小型化することができる。

【0009】

【発明の実施の形態】次に、この発明の一実施形態としての小型化学反応装置を燃料改質型の燃料電池を用いた燃料電池システムに適用した場合について説明する。図 1 は燃料電池システム 10 の一例の要部のブロック図を示したものである。この燃料電池システム 10 は、燃料部 11、小型化学反応装置 12、発電部 16、充電部 17などを備えている。燃料部 11 は、発電用燃料（例えばメタノール水溶液）が封入された燃料パックなどからなり、発電用燃料を小型化学反応装置 12 に供給する。小型化学反応装置 12 は、燃料気化部 13、改質部 14、一酸化炭素除去部 15などを備えている。

【0010】次に、図 2 は小型化学反応装置 12 の斜視図を示し、図 3 はその A-A 線に沿う断面図を示したものである。この小型化学反応装置 12 は、小型の第 1 ～

4

21、25 はガラス基板からなり、第 2 ～第 4 基板 22 ～24 はシリコン基板からなっている。第 1 ～第 5 の基板 21 ～25 の寸法は、一例として、長さ 15 ～35 mm 程度、幅 10 ～25 mm 程度程度である。ガラス基板からなる第 1 および第 5 基板 21、25 の厚さは 0.7 mm 程度である。シリコン基板からなる第 2 ～第 4 基板 22 ～24 の厚さは 0.4 ～1.0 mm 程度である。

【0011】シリコン基板からなる第 2 ～第 4 基板 22 ～24 は、この順で、接着剤（図示せず）を介して接着されて積層されている。ガラス基板からなる第 1 基板 21 はシリコン基板からなる第 2 基板 22 の後述する流路 22a が形成されている上面に陽極接合処理により接合され、両端を除いた流路 22a を封止している。ガラス基板からなる第 5 基板 25 はシリコン基板からなる第 4 基板 24 の下面に陽極接合処理により接合されている。

【0012】ここで、代表として、第 2 基板 22 の上面に第 1 基板 21 を接合する陽極接合処理について説明する。第 2 基板 22 の上面に第 1 基板 21 を重ね合わせ、第 2 基板 22 側を陽極とし、第 1 基板 21 側を陰極とする。そして、第 2 基板 22 および第 1 基板 21 を 400 ～600℃程度に加熱した状態で、両極間に 1 kV 程度の直流電圧を印加する。

【0013】すると、第 1 基板 21 内の不純物である陽イオンが第 2 基板 22 から離れる方向に移動し、第 1 基板 21 の第 2 基板 22 側の界面に酸素イオンの濃度の高い層が現れる。すると、第 2 基板 22 の第 1 基板 21 側の界面のシリコン原子と第 1 基板 21 の第 2 基板 22 側の界面の酸素イオンとが結合し、強固な接合界面が得られる。この場合、第 2 基板 22 および第 1 基板 21 を 400 ～600℃程度に加熱し、両極間に 1 kV 程度の直流電圧を印加するのは、第 1 基板 21 内の不純物である陽イオンが第 2 基板 22 から離れる方向に移動する速度を高くするためである。

【0014】さて、図 2 に示すように、第 1 基板 21 の左下には第 1 基板 21 の厚さ方向に貫通された流出口 21a が形成されている。第 2 基板 22 の上面側には、図 4 にも示すように、半導体製造技術で蓄積された微細加工技術を用いて、蛇行した微小な反応炉の一部となる流路 22a が形成されている。この場合、図 4 において、流路 22a の一端に位置する流入口 22d は第 2 基板 22 の左下側に配置され且つ第 1 基板 21 の流出口 21a に連通されており、第 1 基板 21 の流出口 21a から流入される流体を流路 22a に導入する機能を有する。

【0015】また、流路 22a の他端に位置する流出口 22b は図 4 中、第 2 基板 22 の右上側に配置され且つ第 2 基板 22 の厚さ方向に貫通されており、流路 22a 内を流れる流体を基板の外に流出する機能を有する。このとき、図示はしないが流入口 22d および流出口 22b には、燃料電池システム 10 の制御回路からの信号に

応じて流体の供給量を制御するマイクロポンプが形成さ

(4)

特開2003-290649

5

れている。そして、第2基板22の一面に接合された第1基板21により覆われた流路22aにより、燃料気化部13の蛇行した反応炉が構成されている。

【0016】第3基板23の一面には、図5にも示すように、半導体製造技術で蓄積された微細加工技術を用いて、蛇行した微小な反応炉の一部となる流路23aが形成されている。この場合も、図5において、流路23aの一端に位置する流入口23dは、第3基板23の右上側に配置され且つ第2基板22の流出口22bに連通されており、第2基板22の流出口22bから流入される流体を流路23aに導入する機能を有する。

【0017】また、流路23aの他端に位置する流出口23bは図5中、第3基板23の左下側に配置され且つ、第3基板23の厚さ方向に貫通されており、流路23a内を流れる流体を基板の外に流出する機能を有する。このとき、図示はしないが流入口23dおよび流出口23bには、燃料電池システム10の制御回路からの信号に応じて流体の供給量を制御するマイクロポンプが形成されている。

【0018】そして、第3基板23の上面に接合された第2基板22により覆われた流路23aにより、改質部14の蛇行した反応炉が構成されている。第3基板23の流路23aの内壁面には触媒層23cが設けられている。この触媒層23cは流路23aの内壁面全体に設けられていてもよいし、部分的に設けられていてもよい。触媒層23cは、例えばCu、ZnO、Al₂O₃などの改質触媒からなっている。

【0019】第4基板24の一面には、図6にも示すように、半導体製造技術で蓄積された微細加工技術を用いて、蛇行した微小な反応炉の一部となる流路24aが形成されている。この場合も、図6において、流路24aの一端に位置する流入口24dは第4基板24の左下側に配置され且つ第3基板23の流出口23bに連通されており、第3基板23の流出口23bから流入される流体を流路24aに導入する機能を有する。

【0020】また、流路24aの他端に位置する流出口24bは図6中、第4基板24の右上側に配置され且つ第4基板24の厚さ方向に貫通されており、流路24a内を流れる流体を基板の外に流出する機能を有する。このとき、図示はしないが流入口24dおよび流出口24bには、燃料電池システム10の制御回路からの信号に応じて流体の供給量を制御するマイクロポンプが形成されている。

【0021】そして、第4基板24の上面に接合された第3基板23により覆われた流路24aにより、一酸化炭素除去部15の蛇行した反応炉が構成されている。第4基板24の流路24aの内壁面には触媒層24cが設けられている。この触媒層24cは流路24aの内壁面全体に設けられていてもよいし、部分的に設けられていてもよい。触媒層24cは、例えばPt、Al₂O₃など

6

の選択酸化触媒からなっている。

【0022】第4基板24の下面にはTaSiO_xやTaSiO_xNなどの抵抗体薄膜からなる薄膜ヒータ26が流路24a全面を覆うようなべた状に形成されている。薄膜ヒータ26は、この小型化学反応装置12における流体の気化や流体の化学反応（触媒反応）が所定の熱条件による吸熱反応を伴うとき、これらに要する所定の熱エネルギーを供給するためのものであり、制御回路により適温に制御されている。

【0023】第5基板25の上面の中央部（薄膜ヒータ26に対応する領域）には、図7にも示すように、壓ぐり加工により凹部25aが形成されている。第5基板25の図7での右上には流出口25bが形成されている。流出口25bは第4基板24の流出口24bに連通され、後述する燃料電池に水を供給する通路として機能している。第5基板25は、薄膜ヒータ26を保護するほかに、薄膜ヒータ26の熱拡散を防止し、熱効率を良くするためのものである。また、凹部25a内は、断熱性能を高めるため、ほぼ真空としてもよい。

【0024】ここで、シリコン基板からなる第2～第4基板22～24の流路22a～24a、流入口22d～24dおよび流出口22b～24bの形成は、ウェットエッチングやドライエッチングによって行ってもよいが、サンドブラスト法によって行うことが好ましい。すなわち、サンドブラスト法は、加工レートが速く、また装置が比較的安価であるからである。流路22a～24aの寸法は、一例として、幅0.2～0.8mm程度、深さ0.2～0.6mm程度であり、全長は30～1000mm程度である。なお、第2～第4基板22～24としてシリコン基板の代わりに、ガラス基板などを用いてもよい。

【0025】次に、上記構成の小型化学反応装置12の動作について説明する。まず、燃料気化部13では、燃料部11からの液状の発電用燃料（例えばメタノール水溶液）が第1基板21の流入口21aを介して第2基板22の流路22a内に少量供給されるときに、薄膜ヒータ26の発熱による熱エネルギーが第2～第4基板22～24を伝搬し、流路22a内を所定温度に加熱して発電用燃料を気化させ、発電用燃料ガス（例えば発電用燃料がメタノール水溶液の場合、CH₃OH+H₂O）を生成する。

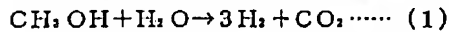
【0026】この生成された発電用燃料ガス（CH₃OH+H₂O）は第2基板22の流出口22bから流入口23dを経由して第3基板23の流路23a内に流出される。すなわち、燃料気化部13で生成された発電用燃料ガス（CH₃OH+H₂O）は改質部14に供給される。そして、改質部14では、第2基板22の流出口22bからの発電用燃料ガス（CH₃OH+H₂O）が第3基板23の触媒層23cを有する流路23a内に供給されるときに、薄膜ヒータ26の発熱による熱エネルギー

(5)

特開2003-290649

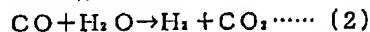
7

が第3基板23、第4基板24を伝搬して流路23a内において、次の式(1)に示すような吸熱反応を引き起こし、水素と副生成物の二酸化炭素とを生成する。



【0027】上記式(1)の左辺における水(H₂O)は、反応の初期では、燃料部11の燃料に含まれているものでよいが、後述する発電部16の発電に伴い生成される水を回収して第1基板21の流入口21aを介して(または第1および第2基板21、22の他の箇所に形成された流入口を介して直接に)第3基板23の流路23a(改質部14)内に供給することが可能である。発電部16の発電中の上記式(1)の左辺における水(H₂O)の供給源は、発電部16のみでもよく、発電部16および燃料部11でも、また燃料部11のみでもよい。なお、このとき微量ではあるが、一酸化炭素が第3基板23の流路23a(改質部14)内で生成されることがある。

【0028】そして、上記式(1)の右辺の生成物(水素、二酸化炭素)、微量の一酸化炭素および未反応の水は第3基板23の流出口23bから流入口24dを経由して第4基板24の流路24a内に流出される。すなわち、改質部14で生成された水素、二酸化炭素、微量の一酸化炭素および未反応の水は一酸化炭素除去部15に供給される。そして、一酸化炭素除去部15では、第3基板23の流出口23bからの気化状態の水素、二酸化炭素、未反応の水および一酸化炭素が第4基板24の触媒層24cを有する流路24a内に供給されると、薄膜ヒータ26の発熱による熱エネルギーの供給を受けて、流路24a内に供給された水素、二酸化炭素、一酸化炭素、未反応の水のうち、一酸化炭素と水とが反応し、次の式(2)に示すように、水素と副生成物の二酸化炭素とが生成される。

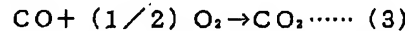


【0029】上記式(2)の左辺における水(H₂O)は、反応の初期では、燃料部11の燃料に含まれているものでよいが、後述する発電部16の発電に伴い生成される水を回収して第1基板21の流入口21aを介して(または第1～第3基板21～23の他の箇所に形成された流入口を介して直接に)第4基板24の流路24a(一酸化炭素除去部15)内に供給することが可能である。発電部16の発電中の上記式(2)の左辺における水(H₂O)の供給源は、発電部16のみでもよく、発電部16および燃料部11でも、また燃料部11のみでもよい。

【0030】そして、最終的に一酸化炭素除去部15の反応炉を構成する流路24aを有する第4基板24の流出口24aを介して第5基板25の流出口25aに到達する流体はそのほとんどが水素、二酸化炭素となる。なお、第5基板25の流出口25aに到達する流体に極微量の一酸化炭素が含まれている場合、残存する一酸化炭素

8

素を大気中から逆止弁を介して取り込まれた酸素に接触させることで、次の式(3)に示すように、二酸化炭素が生成され、これにより一酸化炭素が確実に除去される。



【0031】上記一連の反応後の生成物は水素および二酸化炭素(場合によって微量の水を含む)で構成されるが、これらの生成物のうち、二酸化炭素は水素から分離されて大気中に放出される。したがって、一酸化炭素除去部15から発電部16には水素のみが供給される。

【0032】以上のように、上記構成の小型化学反応装置10では、少なくとも、流入口21aを有する第1基板21、燃料気化部13の反応炉を構成する流路22aを有する第2基板22、改質部13の反応炉を構成する流路23aを有する第3基板23および一酸化炭素除去部13の反応炉を構成する流路24aを有する第4基板24をこの順で積層し、3つの流路22a、23a、24aをその各間の第2および第3基板22、23に形成された流出口22b、23bを介して一筆書き状に連通させているので、各基板間に設けられた3つの流路22a、23a、24aで3つの化学反応を連続して行うことができる上、熱が必要とされる流路22a、23a、24aが重なるように第1基板21～第4基板24を積層することで1つの薄膜ヒータ26からの熱が基板を介して効率的に伝搬するので、各基板ごとに加熱手段を形成しなくてよいために、装置全体を簡素化および小型化することができる。

【0033】また、上記実施形態では、流路22a、23a、24aを基板22、23、24の上面に設けたが、図8に示すように、基板の下面側に流路を設けてもよい。シリコン基板からなる基板52、53、54は、実質的にそれぞれ基板22、23、24に相当し、これらの流路52a、53a、54aはそれぞれ燃料気化部13、改質部14、一酸化炭素除去部15を構成する。そして、流路53a、54aの表面には、それぞれ式(1)の反応を促進させる改質触媒層53c、式(2)の反応を促進させる選択酸化触媒層54cが設けられている。

【0034】基板52の流路52aの一端に位置する流入口52dは、基板52の厚さ方向に貫通されており、燃料部11からの液状の発電用燃料を流路52aに導入する通路であり、流路52aの他端に位置する流出口52bは、流路52aで気化された発電用燃料を改質部14に供給する通路である。

【0035】基板53の流路53aの一端に位置する流入口53dは、基板53の厚さ方向に貫通されており、気化された発電用燃料を流路53aに導入する通路であり、流路53aの他端に位置する流出口53bは、流路53aで気化された発電用燃料を改質して一酸化炭素除去部15に供給する通路である。

(6)

特開2003-290649

9

【0036】基板54の下面には、基板54の流路54aの下部を覆うように薄膜ヒータ26が形成され、薄膜ヒータ26の周囲には一定の空間を形成する凹部25aが配置されるようにガラスからなる基板25が基板54の下面に陽極接合法により接合されている。基板25には、水素を含むとともに一酸化炭素除去部15で一酸化炭素濃度が極めて薄くされた流体を発電部16に供給する通路となる流出口25bが基板25の厚さ方向に貫通されて形成されている。なお、図示はしないが各流入口および各流出口には、燃料電池システム10の制御回路からの信号に応じて流体の供給量を制御するマイクロポンプが形成されている。

【0037】ところで、燃料気化部13では、第2基板22の流路22a内の加熱温度は、メタノール水溶液を気化させる関係から、100℃以上が望ましく120℃程度が最適である。改質部14では、第3基板23の流路23a内の加熱温度は、上記式(1)に示すような吸熱反応および触媒の耐熱性の関係から、250℃以上320℃以下が望ましく、280℃程度が最適である。一酸化炭素除去部15では、第4基板24の流路24a内の加熱温度は、上記式(2)に示すような吸熱反応および触媒の耐熱性の関係から、150℃以上220℃以下が望ましく、180℃程度が最適である。

【0038】そこで、必要加熱温度が最も高い改質部14を薄膜ヒータ26側とし、必要加熱温度が最も低い燃料気化部13を薄膜ヒータ26から最も離間させ、必要加熱温度が中間である一酸化炭素除去部15を燃料気化部13と改質部14との間に設けるようにしてもよい。

【0039】図9(a)～図9(c)はそれぞれ、燃料気化部13を構成するシリコン基板からなる基板22、一酸化炭素除去部15を構成するシリコン基板からなる基板64、改質部14を構成するシリコン基板からなる基板63の平面図であり、図10は、図9のB-B線に沿う小型化学反応装置の各基板の積層状態の断面図である。

【0040】基板64には、基板22の流出口22bから気化された発電用燃料を基板63の流入口63dに導入するために、基板64の厚さ方向に貫通した貫通口64eが形成されている。

【0041】基板63には上面に蛇行した流路63aが形成され、流路63aの表面には、流路63aの一端に位置する流入口63dから流入された気相の発電用燃料により水素を生成するための改質触媒層63cが形成され、流路63aの他端の位置には改質された流体を排出する流出口63bが形成されている。

【0042】また、基板64の上面には蛇行した流路64aが形成され、流路64aの一端には、基板63の流出口63bからの流体を取り入れる流入口64dが基板64の厚さ方向に貫通して形成されている。そして、流路64aの表面には、改質された流体のうちの酸化炭素

10

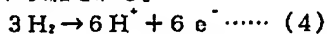
素を酸化するための選択酸化触媒層64cが設けられており、流路64aの他端には水素を含み、一酸化炭素の濃度が極めて低い流体を排出する流出口64bが基板64の厚さ方向に貫通して形成されている。

【0043】そして、基板63には、基板64の流出口64bから排出された流体のうちの少なくとも水素を、基板25の流出口25bを経由して発電部16に供給するために、基板63の厚さ方向に貫通している流出口63eが形成されている。

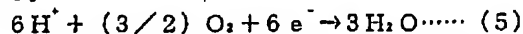
【0044】次に、発電部16および充電部17について説明する。発電部16は、図11に示すように、周知の固体高分子型の燃料電池からなっている。すなわち、発電部16は、Pt、Cなどの触媒が付着された炭素電極からなるカソード31と、Pt、Ru、Cなどの触媒が付着された炭素電極からなるアノード32と、カソード31とアノード32との間に介在されたフィルム状のイオン導電膜33と、を有して構成され、カソード31とアノード32との間に設けられた2次電池やコンデンサなどからなる充電部17に電力を供給するものである。

【0045】この場合、カソード31の外側には空間部34が設けられている。この空間部34内には一酸化炭素除去部15からの水素が供給され、カソード31に水素が供給される。また、アノード32の外側には空間部35が設けられている。この空間部35内には大気中から逆止弁を介して取り込まれた酸素が供給され、アノード32に酸素が供給される。

【0046】そして、カソード31側では、次の式(4)に示すように、水素から電子(e⁻)が分離した水素イオン(プロトン; H⁺)が発生し、イオン導電膜33を介してアノード32側に通過するとともに、カソード31により電子(e⁻)が取り出されて充電部17に供給される。



【0047】一方、アノード32側では、次の式(5)に示すように、充電部17を経由して供給された電子(e⁻)とイオン導電膜33を通過した水素イオン(H⁺)と酸素とが反応して副生成物の水が生成される。



【0048】以上のような一連の電気化学反応(式(4)および式(5))は概ね室温～80℃程度の比較的低温の環境下で進行し、電力以外の副生成物は、基本的に水のみとなる。発電部16で生成された電力は充電部17に供給され、これにより充電部17が充電される。

【0049】発電部16で生成された副生成物としての水は回収される。この場合、上述の如く、発電部16で生成された水の少なくとも一部を改質部14や一酸化炭素除去部15に供給するようにすると、燃料部11内に

11

当初封入される水の量を減らすことができ、また回収される水の量を減らすことができる。

【0050】ところで、現在、研究開発が行われている燃料改質方式の燃料電池に適用されている燃料としては、少なくとも、水素元素を含む液体燃料または液化燃料または気体燃料であって、発電部16により、比較的高いエネルギー変換効率で電気エネルギーを生成することができる燃料であればよく、上記のメタノールの他、例えば、エタノール、ブタノールなどのアルコール系の液体燃料や、ジメチルエーテル、イソブタン、天然ガス（CNG）などの液化ガスなどの常温常圧で気化される炭化水素からなる液体燃料、あるいは、水素ガスなどの気体燃料などを良好に適用することができる。

【0051】なお、上記実施形態では、平板型熱源として薄膜ヒータ26を用いた場合について説明したが、これに限定されるものではない。例えば、図3において、薄膜ヒータ26および第5基板25を取り除き、代わりに、この発明の他の実施形態として、図12に示すシリコン基板やガラス基板などからなる燃焼用基板41を第4基板24の下面に接合するようにしてもよい。

【0052】燃焼用基板41の一面には、半導体製造技術で蓄積された微細加工技術を用いて、蛇行した微小な流路41aが形成されている。この場合、図12において、流路41aの一端部は燃焼用基板41の右下に配置され、他端部は燃焼用基板41の左上に配置されている。流路41aの一端部および他端部における燃焼用基板41には流入口41bおよび流出口41cが形成されている。燃焼用基板41の図12での右上には、第4基板24の流出口24bに連通される流出口41dが形成されている。

【0053】燃焼用基板41の流路41aの内壁面には燃焼触媒層（図示せず）が設けられている。この燃焼触媒層は流路41aの内壁面全体に設けられていてもよいし、部分的に設けられていてもよい。ここで、燃焼触媒層は、例えばPt、Au、Agなどからなっている。

【0054】そして、この燃焼用基板41では、燃焼用ガス（例えば水素ガス）が封入されたボンベなどからの燃焼用ガスおよび大気中から逆止弁を介して取り込まれた酸素（空気）からなる燃焼用流体が流入口41bを介して流路41a内に供給されると、この供給された燃焼用流体が燃焼触媒層上で燃焼反応により燃焼し、この燃焼により熱エネルギーが発生する。そして、この発生した熱エネルギーにより、第2～第3基板22～24の各流路22a～24aを加熱する。一方、燃焼ガスは流出口41cから大気中に放出される。

【0055】また、図3に示す第5基板25の下面に図12に示す燃焼用基板41を接合するようにしてもよい。このようにした場合には、燃焼用基板41で発生した熱エネルギーにより、第2～第4基板22～24の各流路22a～24aを加熱し、薄膜ヒータ26へ供給す

(7)

特開2003-290649

12

る電力を制御することにより、各流路22a～24a内の加熱温度を制御するようにする。

【0056】また、上述の如く、第2～第4基板22～24の各流路22a～24a内の必要加熱温度は異なるので、第2および第3基板22、23の各下面にも薄膜ヒータおよび凹部などを有する基板を設け、薄膜ヒータ26を含む各薄膜ヒータで各流路22a～24a内の加熱温度を制御するようにしてもよい。

【0057】また、図13に示すこの発明のさらに他の実施形態のように、図2および図3に示すような小型化学反応装置12を2つ用意して、その第5基板25、25を互いに接合するようにしてもよい。この場合、上側および下側の第4および第5基板24、25の流出口24b、25bの配置位置を例えば基板の短辺方向中央部とし、上側の第1～第3基板21～23に形成された流出口27に連通させると、流入口21aは2つでも、流出口27は1つとすることができる。また、図13において、2枚の第5基板25を省略し、2枚の第4基板24間に1つの薄膜ヒータ26または図12に示す燃焼用基板41を介在させるようにしてもよい。

【0058】さらに、例えば図3では、燃料気化部、改質部および一酸化炭素除去部の各反応炉を構成する流路を有する基板をそれぞれ1枚とした場合について説明したが、これに限定されるものではない。例えば、処理能力に応じて、燃料気化部の反応炉を構成する流路を有する基板を連続して2枚とし、改質部の反応炉を構成する流路を有する基板を1枚とし、一酸化炭素除去部の反応炉を構成する流路を有する基板を連続して3枚とし、それぞれの処理能力が同じとなるようにしてもよい。

【0059】このように小型化学反応装置12を複数の基板を積層することで省スペース化することができ、燃料電池システム10自体の寸法並びに形状を、乾電池などの汎用の化学電池の寸法並びに形状と一致するように設計することができる。

【0060】

【発明の効果】以上説明したように、この発明によれば、積層された複数の小型の基板の各基板間にそれぞれ設けられた複数の流路をその間の基板に形成された連通口を介して連通させているので、各基板間に設けられた複数の流路で複数の化学反応を連続して行うことができる上、装置全体を簡素化および小型化することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】この発明の一実施形態としての小型化学反応装置を備えた燃料電池システムの一例の要部のブロック図。

【図2】図1に示す小型化学反応装置の斜視図。

【図3】図2のA-A線に沿う断面図。

【図4】図2および図3に示す第2基板の平面図。

【図5】図2および図3に示す第3基板の平面図。

(8)

特開2003-290649

13

14

【図6】図2および図3に示す第4基板の平面図。

【図7】図2および図3に示す第5基板の平面図。

【図8】この発明の他の実施形態としての小型化学反応装置の断面図。

【図9】(a)～(c)はこの発明のさらに他の実施形態としての小型化学反応装置の各基板の平面図。

【図10】図9のB-B線に沿う小型化学反応装置の各基板の積層状態の断面図。

【図11】図1に示す発電部および充電部の概略構成図。

【図12】この発明のさらに他の実施形態としての小型化学反応装置の燃焼用基板の平面図。

【図13】この発明のさらに他の実施形態としての小型化学反応装置の斜視図。

【図14】従来の小型化学反応装置の一例の透過平面図。

【図15】図14のC-C線に沿う断面図。

【符号の説明】

10 燃料電池システム

11 燃料部

12 小型化学反応装置

13 燃料気化部

* 14 改質部

15 一酸化炭素除去部

16 発電部

17 充電部

21 第1基板

21a 流入口

22 第2基板

22a 流路

22b 流出口

10 23 第3基板

23a 流路

23b 流出口

23c 触媒層

24 第4基板

24a 流路

24b 流出口

24c 触媒層

25 第5基板

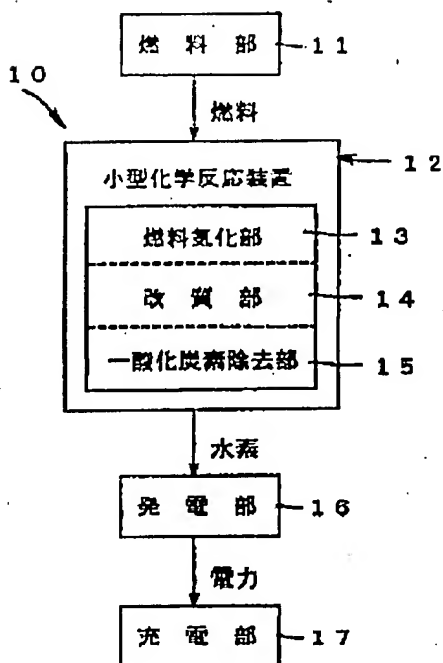
25a 凹部

20 25b 流出口

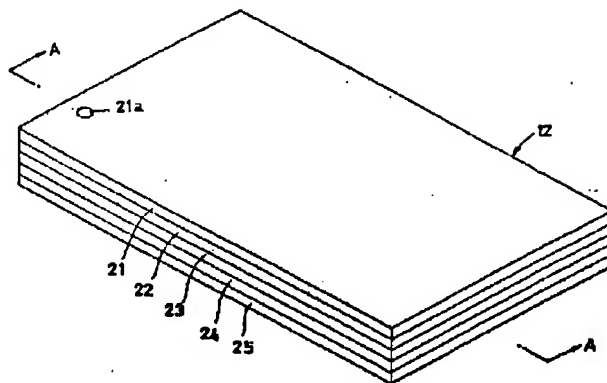
26 薄膜ヒータ

*

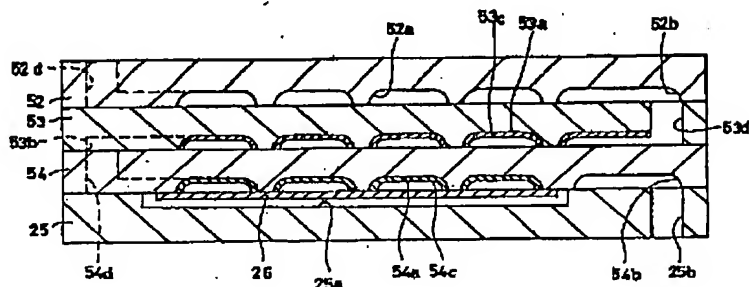
【図1】



【図2】



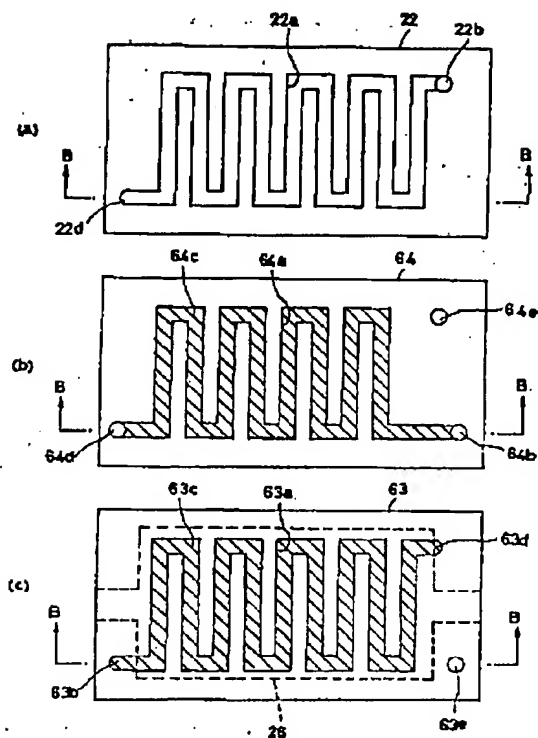
【図8】



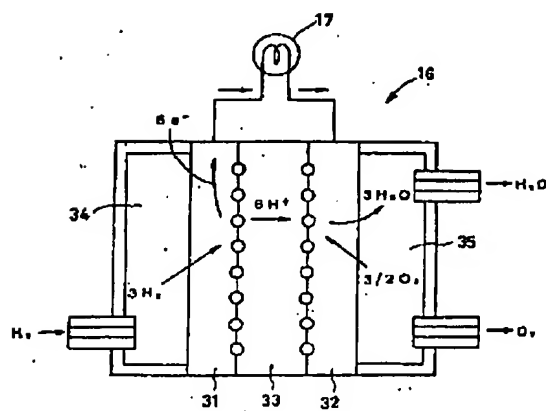
(10)

特開2003-290649

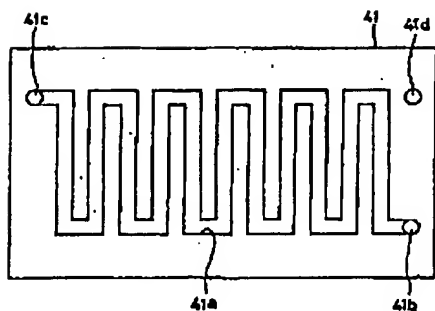
【図9】



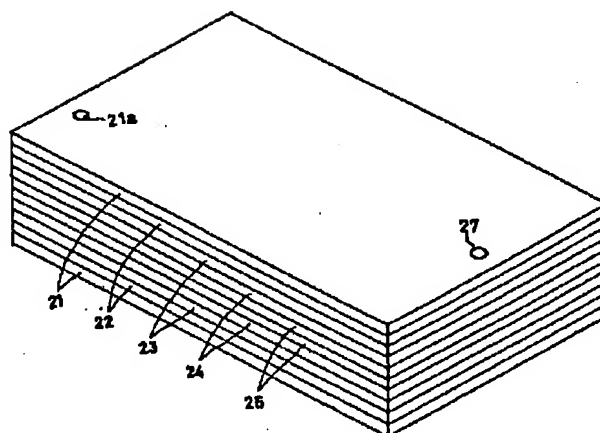
【図11】



【図12】



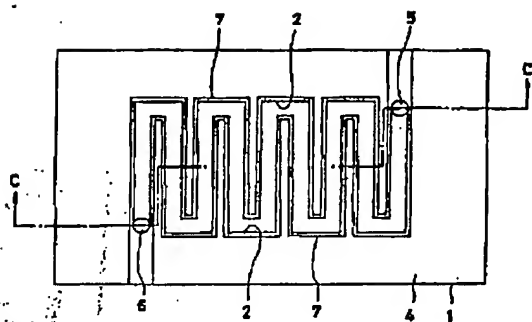
【図13】



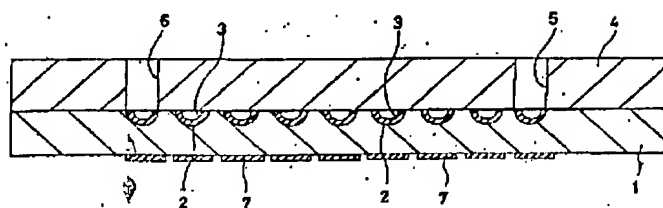
(11)

特開2003-290649

【図14】



【図15】



フロントページの続き

Fターム(参考) 4G075 AA02 BA05 BB02 CA02 CA12
CA45 CA54 DA02 EA06 EB50
EE31 FA12 FB02 FB04 FB06
FC07
4G140 EA02 EA06 EB12 EB32 EB35
EB44 EB48
5H026 AA06
5H027 AA06 BA01